

8. Кенеман Ф.Е. О свободном истечении сыпучих тел // Известия АН СССР. ОТН. Механика и машиностроение. – 1960. – № 2. – С. 70–77.
9. Клейн Г.К. Строительная механика сыпучих тел. – М.: Стройиздат, 1977. – 256 с.
10. Соколовский В.В. Статика сыпучей среды. – М.: Физматгиз, 1960. – 244 с.
11. Прошунин Ю.Е. Об определении насыпной плотности угольной загрузки коксовых печей // Кокс и химия. – 1994. – № 2. – С. 14–19.
12. Школлер М.Б., Прошунин Ю.Е., Николаева В.З., Шабаршова Ю.В. Физико-механические свойства угольной шихты ЗСМК в зависимости от влажности и уплотняющего давления // Кокс и химия. – 1988. – № 10. – С. 15–17.
13. Walters J.K. A Theoretical Analysis of Stresses in Silos with Vertical Walls // Chemical Engineering Science. – 1973. – V. 28. – P. 13–21.
14. Бушманова О.П., Ревуженко А.Ф. Исследование задачи Янсона // Физико-технические проблемы разработки полезных ископаемых. – 1981. – № 3. – С. 3–15.
15. Прошунин Ю.Е. К расчету поля напряжений в неподвижном слое сыпучего материала // Физико-технические проблемы разработки полезных ископаемых. – 2004. – № 5. – С. 1–9.
16. Прошунин Ю.Е. Использование теории предельного напряженного состояния для определения плотности угольной загрузки // Кокс и химия. – 1995. – № 10. – С. 8–12.
17. Cowin S.C. The Theory of Static Loads in Bins // Journal of Applied Mechanics. – 1977. – V. 44. – № 9. – P. 409–412.
18. Takami A., Syoten O. A Theory of the Pressure Distribution in Powder in Equilibrium in a Cylindrical Vessel // Powder Technology. – 1974. – V. 10. – P. 295–301.
19. Игнатов В.И., Быков Е.Н., Шулев А.С. О распределении давления засыпки на подпорную стенку // Основания, фундаменты и механика грунтов. – 1973. – № 5. – С. 41–43.
20. Ухмылова Г.С. Разработка технологии парциальной загрузки шихты // Кокс и химия. – 1992. – № 4. – С. 51–55.

Поступила 22.12.2006 г.

УДК 621.039.51

## ПОЛУЭМПИРИЧЕСКИЙ МЕТОД КОНТРОЛЯ ТВЕРДЫХ ОТХОДОВ СРЕДНЕЙ И ВЫСОКОЙ АКТИВНОСТИ

К.М. Измestьев\*, Е.А. Комаров\*, И.Н. Сеелев\*, П.М. Гаврилов, М.Е. Силаев\*\*

ФГУП «Горно-химический комбинат», г. Железнодорожск Красноярского края

\*ФГУП «Сибирский химический комбинат», ЗАТО Северск Томской области

\*\*Томский политехнический университет

E-mail: silaev@k21.phtd.tpu.ru

*Разработан полуэмпирический метод контроля средне- и высокоактивных твердых радиоактивных отходов, основанный на прямых измерениях их активности и нуклидного состава в кузове автомобиля. Энергетический диапазон измерений – от 80 до 3000 кэВ. Диапазон определяемых активностей от  $10^6 \dots 10^{12}$  Бк/кг. Проведена метрологическая аттестация и определены основные погрешности предлагаемого метода, не превышающие 60 %.*

### Введение

Согласно действующей нормативной документации контроль радионуклидного состава и активности твердых радиоактивных отходов (ТРО) является обязательной процедурой [1]. При определении указанных характеристик для средне- и высокоактивных ТРО возникает ряд трудностей, которые обусловлены с одной стороны необходимостью выполнять все операции дистанционно и при минимальном вмешательстве персонала [1, 2]. С другой стороны, измеряемые объекты (счетные образцы) часто имеют сложную геометрическую форму, а также неравномерное распределение материала и активности по объему счетного образца. Это приводит к значительной неопределенности результатов при контроле активности ТРО.

Целью настоящей работы являлась разработка гамма-спектрометрического метода контроля активности и нуклидного состава средне- и высокоактивных ТРО, включающего соответствующее методическое и метрологическое обеспечение.

### Гамма-спектрометрический метод контроля активности и нуклидного состава средне- и высокоактивных ТРО

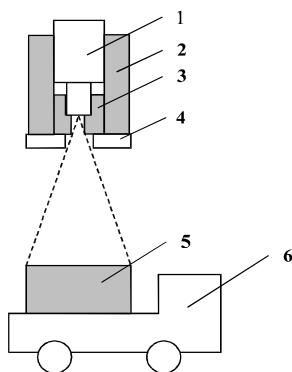
Разработанный метод основан на непосредственном измерении активности и нуклидного состава отходов на гамма-спектрометре с расширенной неопределенностью ( $P=0,95$ ) не более 60 % в энергетическом диапазоне от 80 до 3000 кэВ и диапазоне активности ТРО от  $10^6 \dots 10^{12}$  Бк/кг. Измерения проводятся в геометрии, соответствующей кузову автомобиля, предназначенного для перевозки отходов данного класса.

Сущность предложенного способа измерений заключается в регистрации и последующем анализе аппаратного спектра гамма-излучения счетного образца ТРО с помощью метода Монте-Карло [3, 4]. На первом этапе на основе аппаратных спектров образцовых стандартных источников гамма-излучения определяется зависимость эффективности регистрации гамма-излучения от его энергии в геометрии «точка». В дальнейшем, используя расчетную

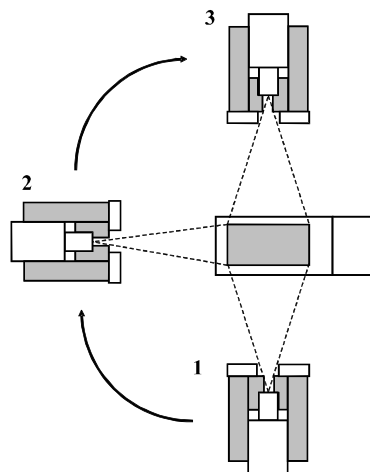
статистическую модель, производится пересчет эффективности регистрации гамма-излучения от его энергии для геометрии «кузов автомобиля» (объемный источник с учетом самопоглощения). В расчете используются геометрические параметры кузова, плотность и элементный состав радиоактивных отходов и материала кузова автомобиля.

Контроль ТРО, согласно предложенной методике, осуществляется в ходе выполнения ряда последовательных технологических операций, которым предшествует полуэмпирическая калибровка спектрометрического тракта по эффективности. Для этого отходы загружают в кузов автомобиля; определяют масса загруженных в автомобиль ТРО; автомобиль с ТРО устанавливают на площадку радиационного контроля. При помощи гамма-спектрометра измеряют скорость счета для дискретных энергий гамма-излучения ТРО в установленном энергетическом диапазоне. Измерения выполняются в одной из двух геометрий, схемы которых приведены на рис. 1, 2. «Простая» геометрия предполагает однократное измерение излучения ТРО детектором, расположенным над кузовом сверху (рис. 1).

В «усредненной» геометрии (рис. 2), для учета неравномерности распределения активности ТРО по объему кузова, проводится серия из трех измерений в горизонтальной плоскости сечения кузова автомобиля. Детектор смещается относительно бортов автомобиля последовательно с шагом  $90^\circ$ . Результаты измерений усредняются. Для всех геометрий измерений телесный угол детектора, образуемый свинцовым коллиматором, охватывает всю видимую поверхность кузова. Ось коллиматора совпадает с осью детектора, что позволяет воспользоваться при измерениях концепцией эффективного центра детектирования. Идентификацию и расчет удельной активности гамма-излучения отходов, находящихся в кузове автомобиля, осуществляют с использованием результатов определения скоростей счета в пиках полного поглощения и согласно результатам полуэмпирической калибровки детектора по эффективности регистрации фотонов гамма-излучения ТРО.



**Рис. 1.** Схема контроля ТРО с расположением детектора гамма-излучения над кузовом автомобиля (вид сбоку): 1) детектор; 2) свинцовая защита; 3) коллимирующее устройство; 4) дистанцирующая площадка; 5) кузов автомобиля с ТРО; 6) транспортное средство



**Рис. 2.** Схема контроля ТРО со смещением детектора гамма-излучения в горизонтальной плоскости (вид сверху): → – направление перемещения детектора в горизонтальной плоскости; 1–3 – контрольные позиции детектора, предназначенные для измерений

Предлагаемый подход к выполнению контроля активности и нуклидного состава средне- и высокоактивных ТРО может использоваться не только для геометрии кузова автомобиля, но также и для геометрий контейнеров любых размеров, предназначенных для временного (долговременного) хранения средне- и высокоактивных отходов.

Разработанная методика контроля нуклидного состава и активности средне- и высокоактивных ТРО согласована и аттестована Госстандартом России (Центром метрологии ионизирующих излучений (Федеральным государственным унитарным предприятием «Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений») и внедрена на Федеральном государственном унитарном предприятии «Сибирский химический комбинат» (ФГУП СХК).

#### Метрологическая аттестация гамма-спектрометрического метода и анализ результатов аттестации

С целью проверки правильности определения активности гамма-излучающих нуклидов ТРО при помощи предложенного полуэмпирического метода калибровки, а также для установления границ неопределенностей (погрешностей), была проведена метрологическая аттестация методики.

Основным требованием к проведению процедуры метрологической аттестации являлось проведение контрольных измерений в геометриях, соответствующих условиям измерений ТРО на ФГУП СХК (объемный источник в геометрии «кузов автомобиля» с учетом самопоглощения). Поэтому для проведения аттестации выполняли следующие операции:

1. Изготовление образцовых источников специального назначения (ОИСН) в геометрии «кузов автомобиля» с использованием стандартных аттестованных точечных источников

гамма-излучения и нерадиоактивных материалов различной плотности, предназначенных для имитации состава радиоактивных отходов. Точечные источники размещали внутри нерадиоактивного материала в специальных пеналах чтобы избежать их возможного повреждения. ОИСН изготавливали с различным распределением активности (точечных источников) по геометрии кузова и различной плотностью загружаемых нерадиоактивных материалов.

- При помощи гамма-спектрометра были измерены скорости счета для дискретных энергий гамма-излучения ОИСН в геометрии «кузов автомобиля» для двух предложенных геометрий измерений («простой» и «усредненной»).
- По результатам полуэмпирического определения эффективности измерений была выполнена идентификация и определение активности гамма-излучения образцовых источников специального назначения с последующим сравнением с паспортными значениями активности используемых точечных источников.

Для аттестации были подготовлены три типа ОИСН в геометрии «кузов автомобиля»:

- без поглощающего материала — в кузове автомобиля находились только дистанционирующие слои картона и точечные источники фотонов гамма-излучения;
- с поглощающим нерадиоактивным материалом различной насыпной плотности — в кузове слоями размещали нерадиоактивный материал (опилки, чистая спецодежда, пленка, картон, пластикат, металлические пластины) и точечные источники фотонов гамма-излучения;
- с поглощающим нерадиоактивным материалом, соответствующим составу отходов средней и высокой активности реакторного производства СХК (алюминиевые брикеты технологических каналов, графитовые втулки, стальные пластины и т. д.) — в кузове слоями размещали нерадиоактивный материал и точечные источники фотонов гамма-излучения.

На основании сравнения паспортных значений активности радионуклидов точечных образцовых источников (из свидетельств о поверке используемых источников) со средними значениями измеренной активности радионуклидов ОИСН в геометрии «кузов автомобиля» был проведен анализ результатов аттестационных измерений.

Для того чтобы результаты измерений соответствовали методическим требованиям, необходимо соблюдение следующего условия [5]:

$$|\bar{A} - A_0| \leq \sqrt{U(P)^2 + \delta(A)^2}, \quad (1)$$

где  $\bar{A}$  — среднее значение активности образцового источника специального назначения в геометрии «кузов автомобиля», полученное после расчета, Бк;  $A_0$  — значение активности образцового источника (из свидетельства о поверке источника), Бк;  $U(P)$  — рас-

ширенная неопределенность расчета значения активности образцового источника специального назначения в геометрии «кузов автомобиля», Бк;  $\delta(A)$  — погрешность значения активности образцового источника (из свидетельства о поверке источника), Бк.

Некоторые результаты анализов аттестационных измерений ОИСН с источниками Cs-137 и Co-60 активностью  $1,6 \cdot 10^9$  и  $3,18 \cdot 10^8$  Бк соответственно представлены в таблице.

**Таблица.** Анализ применимости полуэмпирического метода калибровки

Условия проведения измерений			$\frac{ \bar{A} - A_0 }{A_0}$ , %	$\bar{A} - A_0$ , Бк	$\sqrt{U(P)^2 + \delta(A)^2}$ , Бк
Тип ОИСН	Геометрия	Изотоп			
1	Простая	Cs-137	7	$1,12 \cdot 10^8$	$2,91 \cdot 10^8$
		Co-60		$2,23 \cdot 10^7$	$5,78 \cdot 10^7$
	Усредненная	Cs-137	6	$9,60 \cdot 10^7$	$2,71 \cdot 10^8$
		Co-60		$1,90 \cdot 10^7$	$5,39 \cdot 10^7$
2	Простая*	Cs-137	39	$6,24 \cdot 10^8$	$5,78 \cdot 10^8$
		Co-60		$1,24 \cdot 10^8$	$1,05 \cdot 10^8$
	Усредненная	Cs-137	25	$4,00 \cdot 10^8$	$5,80 \cdot 10^8$
		Co-60		$7,95 \cdot 10^7$	$1,01 \cdot 10^8$
3	Простая*	Cs-137	52	$8,32 \cdot 10^8$	$7,12 \cdot 10^8$
		Co-60		$1,65 \cdot 10^8$	$1,22 \cdot 10^8$
	Усредненная	Cs-137	29	$4,64 \cdot 10^8$	$7,08 \cdot 10^8$
		Co-60		$9,22 \cdot 10^7$	$1,08 \cdot 10^8$

\*Условие (1) не выполняется

Из приведенных данных следует, что методика измерений применима только для «усредненной» геометрии измерений ТРО.

### Заключение

Предложенный и апробированный гамма-спектрометрический метод контроля позволяет определять нуклидный состав и производить расчет удельной и абсолютной активности средне- и высокоактивных ТРО в геометрии «кузов автомобиля», предназначенного для перевозки данного класса радиоактивных отходов. Метод пригоден для контроля твердых радиоактивных отходов в контейнерах различных размеров при условии, что результаты измерений активности ТРО из нескольких положений (не менее трех) усредняются.

Реализованный в предлагаемом гамма-спектрометрическом методе расчетный алгоритм (статистический метод Монте-Карло) позволяет определять удельную активность ТРО, помещенных в кузов спецавтомобиля (неоднородный объемный источник с учетом самопоглощения излучения), с расширенной неопределенностью, укладываемой в допустимый диапазон до 60 %.

Работоспособность метода доказана в серии экспериментов и практике обращения с радиоактивными отходами на ФГУП СХК. Разработанный гамма-спектрометрический метод пригоден для контроля ТРО на других радиационно-опасных предприятиях.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99): 2.6.1. Ионизирующее излучение, радиационная безопасность СП 2.6.1.799-99. — М.: Минздрав России, 2000. — 98 с.
2. НП-020-2000 Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование твердых радиоактивных отходов. Требования безопасности». — М.: Госатомнадзор России, 2000. — 16 с.
3. Загонов В.П., Подоляко С.В., Артемьев В.М. Применение поверхностно ориентированного описания объектов для моделирования трансформации ионизирующего излучения в задачах вычислительной диагностики // Математическое моделирование. — 2004. — Т. 16. — № 5. — С. 103–116.
4. Фано У., Спенсер Л., Бергер М. Перенос гамма-излучения. — М.: Госатомиздат, 1963. — 95 с.
5. ГОСТ Р 8.594-2002 Метрологическое обеспечение радиационного контроля. — М.: Госстандарт России, 2002. — 19 с.

Поступила 04.12.2006 г.

УДК 537.521.7:621.315.6

## ВЛИЯНИЕ МОДИФИЦИРУЮЩЕЙ ДОБАВКИ НАНОПОРОШКА НИКЕЛЯ НА ОСНОВНЫЕ ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОЛИВИНИЛИДЕНФТОРИДА

О.С. Гефле, С.М. Лебедев, С.Н. Ткаченко

НИИ высоких напряжений ТПУ

E-mail: polymer@hvd.tsk.ru

Приведены результаты исследования температурно-частотных зависимостей диэлектрической проницаемости и тангенса угла диэлектрических потерь, электрической прочности и надмолекулярной структуры поливинилиденфторида, модифицированного нанопорошком никеля. Установлено, что введение наночастиц никеля в поливинилиденфторид приводит к уменьшению сферолитов, упорядочиванию надмолекулярной структуры полимера, изменению температуры стеклования, энергии активации проводимости, значений комплексной диэлектрической проводимости.

### Введение

Одним из перспективных направлений материаловедения является создание новых композиционных полимерных материалов (КПМ) с высоким удельным энергосодержанием (более  $10^5$  Дж/м<sup>3</sup>) для высоковольтной импульсной техники. Такие материалы могут найти применение в качестве изоляции емкостных накопителей энергии, работающих на импульсном напряжении. Подобные материалы должны обладать следующими электрофизическими характеристиками: высокими значениями диэлектрической проницаемости ( $\epsilon$ ), электрической и механической прочности, удельного объемного сопротивления, а также малым значением тангенса угла диэлектрических потерь ( $\tan\delta$ ) в широком диапазоне частот внешнего электрического поля и рабочих температур.

Создание КПМ с требуемыми электрофизическими параметрами возможно лишь при условии хорошей совместимости полимерной матрицы и наполнителя. Достаточно перспективной полимерной матрицей может быть поливинилиденфторид (ПВДФ), который относится к частично-кристаллическим полимерам со степенью кристалличности около 50 % [1]. Данный полимер имеет высокую рабочую температуру (до 423 К) и диэлектрическую проницаемость  $\epsilon=9$  при частоте  $10^6$  Гц, что должно обеспечивать более однородное распределение локального поля в объеме КПМ и меньшую

дисперсию комплексной диэлектрической проницаемости. Кроме того, ПВДФ стоек к воздействию ультрафиолетового и ионизирующего излучения, обладает пьезо- и пьезоэлектрическими свойствами, которые могут быть улучшены за счет наполнения ультрадисперсными порошками сегнетоэлектрических керамик [2].

Введение ультрадисперсных наполнителей неорганического происхождения в полимерную матрицу существенно модифицирует структуру и свойства КПМ за счет межфазных взаимодействий и образования граничного нанослоя вблизи частиц наполнителя [3]. Например, при добавлении 3,5 в. ч. никелевого порошка в полипропилен сферолиты становятся меньше почти в два раза по сравнению с чистым полипропиленом, причем в центре каждого сферолита располагаются частицы никелевого порошка, которые инициируют образование полимерного зародыша на их поверхности [4]. При этом наблюдается увеличение прочности полипропиленовых пленок. Следовательно, стабилизация и улучшение электрофизических характеристик ПВДФ могут быть достигнуты за счет искусственного создания центров кристаллизации при введении в полимер ультрадисперсных порошков металлов, например, никеля (Ni). В этой связи, целью данной работы являлось исследование влияния концентрации наночастиц Ni на электрофизические характеристики и надмолекулярную структуру ПВДФ.